AC

### CONCISE EXPLANATION

### JP-B-44-17103, "Ferroelectric Porcelain Composition"

This literature describes in Claim 1 as follows:

A ferroelectric porcelain composition, characterized by substituting at least one atom selected from the group consisting of Sr, Ba, and Oa for a part of Pb atoms in  $xPb(Mg_{1/3}Nb_{2/3})O_3$ - $yPbTiO_3$ - $zPbZrO_3$  type porcelain compositions, wherein x=87.5 to 1, y=81.3 to 0 (excluding 0), z=95.0 to 0 (excluding 0), and x+y+z=100 (unit for all of them is mole%).

60日本分類 62 0 23 20 A 2

### 日本国特許庁

n 特 許 出 願 公 告 昭44—17103

# ⑩特

昭和44年(1969)7月28日 44公告

発明の数 1

(全11頁)

## **函強誘電性磁器組成物**

顧 昭40-50264 20符

- 願 昭40(1965)8月16日 @出

明 者 大内宏 79発

門真市大字門真1006松下電器

産業株式会社内

同

西田正光

同所

⑪出 願 人 松下電器產業株式会社

門真市大字門真1006

代 表 者 松下正治

代 選 人 弁理士 吉崎悦治 外1名

## 図面の簡単な説明

第1図~第3図は本発明による組成物および基 本組成物中の、TiとZr比を変えた場合の誘電 率E、径方向結合係数Kp、共振抵抗Rの変化を 示す曲線図、第4図~第6図は本発明による組成 物の基本組成をSrO,BaO,CaOで置換し20 た場合の同変化を示す曲線図、第7図は本発明の 実施例における誘電率の温度特性を示す曲線図で ある。

### 発明の詳細な説明

た後、直流電圧を印加することによつて電気的に 活性化した窯業組成物に関するものである。

本発明はPbSrBaOa(Mg以Nb1/2) TiZr)03で表わされ、その具体的応用例と しては、たとえば機械的エネルギーを電気的エネ 30 ルギーに変換するピックアップ・マイクロフオン などのごときもの、または逆に電気的エネルギー。 を機械的エネルギーに変換する超音波発生用の振 動子またはフイルター用の電気共振子のごときも のに使用するのに好適な強誘電性磁器組成物を提 35 供するものである。

・従来、このような目的にはPb(Mg/ Nb %)Og-PbTiOg-PbZrOg 三成分系磁器が圧

質的にすぐれた性質を持つていることが明らかにされ、 セラミックとして任意の形状のものが 容易にかつ安 価に得られるため電気機械変換素子として広く用 いられて来ている。

一般に強誘電性磁器を圧電的応用に利用する場 合用途によつてその特性の要求も変わる。たとえ ばピック・アップ、マイクロフォンのどとく電気 的に大きい出力電圧とその周波数特性の平坦性を 望むものでは電気機械結合係数を大きくし、素子 10 の静電容量を大きくするために素材の誘電率の大 きいことが好ましい。またフィルター用素子ある いは強力超音波発生用振動子などの応用において は共振時素子の内部損失を少なくし、変換能率を よくするため共振抵抗を極力小さくすることが望 15 ましい。

本発明はいずれの用途においてもその特性を改 善するものでPb(Mg以Nb¾)O3-PbTiO3 - PbZrO3 三成分組成物のPbの一 部をSr,Ba,Ca原子で置換することによつ て電気機械結合係数と誘電率をきわめて大きくま たは共振抵抗を小さくすることができた。

さらに誘電率および電気機械結合係数の温度変 化率を小さくするととができた。

本発明の強誘電性組成物は成分元素として酸化 本発明は、一般の窯業的手法で磁器体を焼結し25 物の形ではPbO,MgO,Nb<sub>2</sub>O<sub>5</sub>,TiO<sub>2</sub>, ZrO2,とさらにSrO,BaO およびCaOのう ちから選ばれた少なくとも1つの酸化物から構成 され実質的にはPb ((Mg%Nb%)rTiv Zrx )O3のPbを20mole%までBa, Sェ, 〇 a のうちの 1 つの元素で置換したものか らなる。ただし基本組成範囲は x − 8 7.5 ~ 1.0 、 y-81.3~0 (0を含まない)z-95.0~0 (モル%) ( 0を含まない )でx+y+z=100 である。

> との磁器体を製造するにあたつては前記酸化物 の混合物を用いるが、必要に応じてはPbOは Pb<sub>3</sub>O<sub>4</sub> , MgOはMgCO<sub>3</sub>のごとく過酸化物、 炭酸塩などのように加熱して酸化物に分解する化

合物の状態のものまたはそれら酸化物相互の化合物の状態のものを原料に用いることができる。以下本発明の実施例を図面とともに説明する。 実施例

本発明の磁器を作るには化学的純度 9 8 %以上 5 の酸化物または炭酸塩を出発原料に用い第 1表に 示したそれぞれの配合組成になるようにひより量 レゴム内張りをしたポールミルに入れ17時間湿 式混合を行い均一な混合物とする。乾燥後850 ℃で 2時間予備焼成を行い次にこれをポールミル 10 で17時間湿式粉砕する。乾燥後粉砕物に少量の 水を加えて整粒したものを圧力 7 0 0 kg/cm2 で 直径20mm厚さ2mmの円板に成型し第1表中 に記載の組成に応じた温度で 4 5 分間保持し完成 磁器体に焼成する。この場合僅かな酸化鉛の蒸発 15 を防止するために公知のアルミナルツボの密閉容 器中で焼成を行つた。焼成後試料を厚さ1mmの 薄円板に研摩後円板の両面に市販の銀電極を塗布 し焼付ける。次いで試料をシリコンオイル中に浸 せきして100℃で 4K V / mmの直流電界を 1 20 時間印加後、30分間電界冷却をする方法で分極

本発明による磁器の配合組成および誘電的圧電 的性質を表に示す。圧電的性質の測定は I. R. E の伝送線路法で行つた。なお測定値は測定試料 3 25 ~4個の内平均値に近い試料の値を示した。また 表中の記号の意味は次の通りである。

F.T. 燒成温度 (°C)

E 誘 電 率 (1Kc/sec, 20℃. 湿度50%)

tans 誘電正接 (1Kc/sec,20℃.湿 废50%)

Kp 径方向結合係数 (%)

R 共振時の等価抵抗 (Ω)(以後共振 抵抗とよぶ)

実施範囲内の材料中で高い誘電率と径方向結合 係数さらに低い共振抵抗を兼ね備えた代表的組成 45 物は次式のものである。

- (1) Pb<sub>0.97</sub> Sr<sub>0.03</sub> ((Mg ½ Nb ¾ ) <sub>0.125</sub> Ti<sub>0.405</sub> Zr<sub>0.47</sub>)O<sub>3</sub>
- (2) Pb<sub>0.95</sub>Ba<sub>0.05</sub> (Mg<sub>1/3</sub>Nb<sub>2/3</sub>) <sub>0.125</sub> Ti<sub>0.405</sub>Zr<sub>0.47</sub>)O<sub>3</sub>
- (3) Pb<sub>0.95</sub>Ca<sub>0.05</sub> ((Mg ½ N b ¾ )<sub>0.125</sub> Ti<sub>0.405</sub>Zr<sub>0.47</sub>)O<sub>3</sub>
- (4) Pb<sub>0.90</sub>Sr<sub>0.10</sub>((Mg½Nb<sub>2</sub>)<sub>0.125</sub> Ti<sub>0.405</sub>Zr<sub>0.47</sub>)O<sub>3</sub>
- (5) Pb<sub>0.93</sub> Ba<sub>0.05</sub> ((Mg 1/2 N b 2/3 )<sub>0.375</sub> Ti<sub>0.375</sub> Zr<sub>0.25</sub> )O<sub>3</sub>
- (6) Pb 0.90 S r 0.10 ( (Mg 1/3 N b 3/3 ) 0.375 Ti 0.375 Z r 0.25) O 3

実験式(1),(4)の組成物(第1表実施例番号62と64)は同じ(Mg½Nb¾):Ti: Zrモル比(すなわち0.125:0.405: 0.47)を持つ基本組成物の誘電率1090に比べてSrの置換でそれぞれ1150と2328の高い誘電率を示し、また径方向結合係数Kpは基本組成の45.8%からそれぞれ50.2と58.1%に増加し、さらに共振抵抗は28.1からそれぞれ23.7と12.7 Ωに減少している。

同じような結果は基本組成のPbの一部をBaとCaで置換した実験式(2)と(3)(第1実施例66と69)の組成物で得られ誘電率はそれぞれ1215と1198に増加し径方向結合係数は49.6%と49.4%に増加し、共振抵抗は23.2と21.7Ωに減少することがわかつた。

さらに(Mg以Nb以)含量の多い式(5)と
30(6)の組成物(第1表実施例番号33と30)に
おいても同じく基本組成(実施例番号27)に比
べて非常に高い誘電率と小さい共振抵抗をもつた
ものが得られる。との高い誘電率は僅かに結合係
数の低下を伴うがしかしこの値はまだ充分大きく
35 圧電的利用価値のあるものである。

第1~第3図はPb(Mg½Nb¾)O3-PbTlO3-PbZrO3三成分系でPb (Mg½Nb¾)O3含量を25モル%一定としてPb側の一部をSrで5原子%置換した代表的 組成すなわち

Pb 0.95 S r 0.05 (Mg 以 N b ¾ ) 0.025 Tl y Z r <sub>2</sub> O <sub>3</sub> 系で<sup>T i</sup> / Z r 比を ( y = 0 ~ 0.7 5 まで ) 変えた場合の誘電率

と径方向結合係数、共振抵抗の変化を、Sr=0の無置換の場合と対比して示した。これらの図か

ら明らかなように本発明組成物と基本組成物は両れるモルフォトロピック相境界近くの組成いおいて高い誘電率と径方向結合係数および小さい共振抵抗のものが得られる。更にSェを5原子%含む

6

本発明組成物は無置換の基本組成に比べて誘電率、 径方向結合係数、さらに共振抵抗の各特性値が改 良されていることがわかる。

8

御御	<b>超</b>	<del>ا</del> ا		分極24時間後	時間後		
<b>富室</b>		•	ယ	κ (%)	<b>æ</b> G	tans (%)	
-	Pb (Mg 1/8 Nb2/3)0.050 Ti 0.50 O3	1270	915	1 9.1	8 0.4	1.2 2	
2	Pbo.97 Sro.03 (Mg 1/3Nb 2/3) 0.50 Ti 0.50 O3	1250	0 6 6	2 4.5	5 4.0	1.1 5	
က	Pbo.95 Sr 0.05 (Mg 1/3Nb 2/3) 0.50 Ti 0.50 O3	1250	1093	2 5.6	4 7.9	1.2 9	
4	Pb 0,90 Sr 0,10 ( Mg 1/3Nb 2/3 ) 0,50 Ti 0,50 O3	1250	1880	2 0.3	5 0.7	1.7 4	
S	Pb 0.80 Sr 0.20 (Mg 1/3Nb 2/3) 0.50 Ti 0.50 O3	1250	4135	7.0	7 5.2	1.1 2	
9	Pb 0.97 Ba 0.03 ( M & 1/3 Nb 2/3 ) 0.50 Ti 0.05 O3	1250	985	2 7.3	4 7.9	1.0 5	
1	Pb 0.95 Ba 0.05 ( M g 1/3 Nb 2/3 ) 0.50 Ti 0.50 O3	1250	1020	2 6.6	4 4.3	1.2 4	
œ	Pb 0.90 Ba 0.10 ( Mg 1/3 Nb 2/3 ) 0.50 Ti 0.50 O3	1250	1066	2 2.7	4 0.2	1.3 4	
6	Pb 0.80 Ba 0.20 ( M 8 1/3 Nb 2/3 ) 0.50 Ti 0.50 O3	1250	2330	1 4.0	5 0.7	2.1 3	
1 0	Pb 0,97 Ga 0,03 (Mg 1/3Nb 2/3) 0,50 Ti 0,50 O3	1250	169.	2 0.9	7 8.0	.87	
-	Pb 0.95 Ca 0.05 (Mg 1/3Nb 2/3) 0.50 Ti 0.50 O3	1250	669	2 0.6	7 8.3	9 8.	
1 2	Pb 0.90 Ca 0.10 (Mg 1/3 Nb 2/3) 0.50 Ti 0.50 O3	1250	750	2 0.3	7 6.3	6.	
. 3	Pb 0.80 Ca 0.20 (Mg 1/3Nb 2/3) 0.50 Ti 0.50 O3	1250	1178	1 4.4	8 0.2	2.4 1	
1 4	Pb (M & 1/3Nb 2/3) 0.50 Ti 0.37 Zr 0.1303	1270	1433	3 0.1	3 8.4	1.8 5	
1 5	Pb 0.97 Sr 0.03 (M 8 1/3 Nb 2/3) 0.50 Ti 0.37 Zr 0,13 O3	1260	2330	2 8.7	2 6.0	1.68	
1 6	Pb 0.90 Sr 0.10 (M 8 1/3 Nb 2/3) 0.50 Ti 0.37 Zr 0.13 03	1250	4823	1 5.4	9 2.5	3.9 3	
17	Pb ( M & 1/3 Nb 2/3 ) 0.50 Zr 0.50 O3	1300	3 3 2	7.5	8 1 4.0	1:9 0	
8 1	Pbo.97 Sro.03 (Mg 1/3Nb 2/3) 0.50 Zro.50 O3	1290	1024	8.3	474.7.	2.5 5	
6 1	Pb0.95 Sr0.05 (M & 1/3 Nb 2/3) 0.50 Zr0.50 O3	1 2 9 0	3976	1 2.0	1 0 6.3	3.9 5	

民

2 0	Pb 0.90 Ba 0.10 ( M & 1/3 Nb 2/3 ) 0.50 Zr 0.50 O3	1290	4287	9.0	8 6.8	.2 2
2 1	Pbo.97Bao.03 (Mgy3Nb2/3) 0.50Zro.50O3	1290	1186	8.6	3 6 6.7	3.00
2 2	Pbo.95 Bao.05 (Mg 13Nb 2/3) 0.50 Zro.50 O3	1290	3915	8,5	98.1	2.5 3
2 3	Pbo.90Bao.10 (Mg 1/3Nb 2/3) 0.50 Zro.50 03	1290	6054	7.0	6 5.4	2 6.
2 4	Pbo.97 Cao.03 (Mg 1/3Nb2/3) 0.50 Zr 0.50 O3	1290	5 0 9	1 1.0	4 2 0.8	1.8 9
2 5	Pbo.95Cao.05 (Mg 1/3Nb2/3) 0.50Zro.50O3	1290	1326	9.5	2 5 3.0	3.8 1
9 2	Pb 0.90 Ca 0.10 ( M g 1/3 Nb 2/3) 0.50 Zr 0.50 O3	1290	1403	7.1	1 3 6.7	2.2 4
2 7	Pb ( M 8 1/3 Nb 2/3 ) 02375 Ti 0,375 Zr 0,25 O3	1280	1671	4 8.0	1.8.9	2.28
2 8	Pbo. 97 Sro. 03 (Mg 1/3Nb 2/3) 0.375 Ti 0.375 Zro. 2503	1250	1988	4 9.1	1 7.2	2.1 1
2 9	Pb 0.93 Sr 0.05 ( M & 1/3 Nb 2/3 ) 0.375 Ti 0.375 Zr 0.25 O3	1250	2533	5 0.0	1 5.4	2.3 9
3 0	Pb0.90Sr0,10 (Mg1/3Nb2/3)0.375Ti0.375Zr0,25O3	1250	3693	4 2.5	1 6.1	3.10
3 1	Pb 0.80 Sr 0.20 ( M g 1/3 Nb 2/3 ) 0.375 Ti 0.375 Zr 0.25 O3	1.250	6750	1 4.6	1 8.0	0 1.
3 2	Pb 0.97 Ba 0.03 ( M & 1/3 Nb 2/3 ) 0.375 Ti 0.375 Zr 0.25 O3	1250	1866	4 8.3	1 8.1	2.08
33	Pbo.95 Bao.05 (Mg 1/3Nb 2/3) 0.375 Ti 0.375 Zr 0.25 O3	1250	2320	4 7.0	1 6.7	2.4 1
3 4	Pb 0.90 Ba 0.10 ( Mg 1/3 Nb 2/3 ) 0.375 Ti 0.375 Zr 0.25 O3	1250	3267	3 8.2	1 7.9	3.2 0
3 5	Pb 0.80 Ba 0.20 ( Mg 1/3 Nb 2/3 ) 0.315 Ti 0.375 Zr 0.25 O3 1	1250	5012	1 2.3	18.6	5.1 5
3 6	Pb 0.97 Ca 0.03 ( Mg 1/3 Nb 2/3) 0.375 Ti 0.375 Zr 0.25 O3	1.250	1781	4 7.4	1 8.3	1.9 5
37	Pbo.95 Cao.05 (Mg 1/3 Nb 2/3) 0.375 Ti 0.375 Zr 0.25 O3	1250	1850	4 3.7	17.4	1.6 4
3 8	Pb 0.90 Ca 0.10 ( M g 1/3 Nb 2/3 ) 0.375 Ti 0.375 Zr 0.25 O3	1250	2108	3 2.8	1 6.2	1.9 1
3 9	Pbo.80Cao.20 (Mg 1/3Nb 2/3) 0.375 Tio.375 Zr 0.25 Os	1250	2887	1 1.8	18.1	5.62
4 0	Pb (Mg 1/3Nb 2/3) 0.375Ti 0.375Zr 0.2803	1 2 8 0	1247	3 0.2	5 5.4	2.0 7
4 1	Pho. 97 Sro. 03 (Mg 1/3Nb 2/3) 0.375 Ti 0.345 Zro. 28 O3 1	1260	2209	3 9.7	2 2.2	2.7 2

张 #				分極24時間後	時間後	
多	AB 以	મ. ૧.	ω	кр (%)	(C)	tans (%)
4 2	Pb 0.90 Sr 0.10 (Mg 1/3 Nb 2/3) 0.375 Ti 0.345 Zr 0.28 O3	1260	5329	2 6.5	4 6.1	4.90
4 3	PbM & 1/3Nb 2/3 ) 0.25 Ti 0.375 Zr 0.375 O3	1300	9 2 6	4 9.8	2 7.0	2.5 2
4 4	Pbo.97Sro.03 (Mg1/3Nb2/3) 0.25Ti 0.375Zro.375O3	1290	1242	5 0.2	2 4.5	2.1 5
4 5	Pbo.95 Sro.05 (Mg1/3Nb2/3) 0.25 Ti 0.375 Zro.375 O3	1290	1671	4 9.0	2 3.7	2.09
4 6	Pbo.90Sro.10 (Mg1/3Nb2/3) 0.25Ti 0.375 Zro.375O3	1290	2647	3 5.2	2 4.2	2.6 6
4 7	Pbo. 80 Sro. 20 (Mg 1/3 Nb 2/3) 0. 25 Ti 0. 375 Zro. 375 O3	1290	4975	1 2.3	2 6.5	2.68
4 8	Pbo.97 Bao.03 (Mg 1/3 Nb 2/3) 0.25 Ti 0.375 Zr 0.375 O3	1290	1224	4 8.7	2 6.1	2.0 9
4 9	Pb 0.95 Ba 0.05 (Mg 1/3Nb 2/3) 0.25 Ti 0.375 Zr 0.375 O3	1290	1472	4 6.2	2 3.8	2.2 6
2 0	Pb 0.90 Ba 0.10 (Mg 1/3 Nb 2/3) 0.25 Ti 0.375 Zr 0.375 O3	1290	1975	3 7.4	2 5.4	2.5 9
5 1	Pb 0.80 Ba 0.20 (Mg 1/3 Nb 2/3) 0.25 Ti 0.375 Zr 0.375 O3	1290	4 1 0 8	1 5.7	2 6.8	5.40
5 2	Pb 0.97 Ca 0.03 (Mg 1/3 Nb 2/3) 0.25 Ti 0.375 Zr 0.375 O3	1290	1212	5 1.1	2 5.4	2.1 1
5 3	Pb 0.95 Ca 0.05 (Mg 1/3 Nb 2/3) 0.25 Ti 0.375 Zr 0.375 O3	1290	1590	4 8.3	2 4.7	2.0 1
5 4	Pb 0.90 Ca 0.10 (Mg 1/3 Nb 2/3) 0.25 Ti 0.375 Zr 0.375 O3	1290	2872	3 6.6	2 6.8	2.5 0
5 2	Pbo.80Cao.20 (Mg1/3Nb2/3) 0.25Ti 0.375Zr 0.375O3	1290	3721	1 4.1	2 7.5	7.39
5 6	Pb (Mg1/3Nb2/3)0.125Ti0.435Zr0.4403	1310	1246	4 9.2	2 0.6	1.6 5
5 7	Pbo. 97 Sro. 03 (Mg 1/3Nb 2/3) 0. 125 Ti 0. 435 Zro. 4403	1 2 9 0	1355	4 1.1	2 7.6	1.7 2
5 8	Pb 0.95 Sr 0.05 (Mg 1/3Nb 2/3) 0.125 Ti 0.435 Zr 0.4403	1290	1432	3 8.8	1 7.9	1.7 3
5 9	Pbo.85 Sro.15 (Mb 1/3Nb 2/3) 0.125 Ti 0.435 Zro.4403	1310	2347	3 9.8	4 7.1	1.60
0 9	Pbo.80 Sro.20 (Mg 1/3Nb 2/3) 0.125 Ti 0.435 Zro.4403	1310	3700	2 1.8	27.7	3.7 0
		*		•		

6 1	Pb (Mg 1/3Nb 2/3) 0.125 Ti 0.405 Zr 0.44 O3	1310	1090	4 5.8	2 8.1	1.50
6 2	Pbo. 97 Sro. 03 (Mg 1/3 Nb 2/3) 0.125 Ti 0.405 Zro. 4703	1290	1150	5 0.2	2 3.7	2.5 1
6 3	Pb 0. 95 Sr 0. 05 (M 8 1/3 Nb 2/3) 0. 125 Ti 0. 405 Zr 0. 47 O 3	1310	1347	5 3.0	1 9.0	2.2 1
6	Pb 0.90 Sr 0.10 (Mg 1/3 Nb 2/3) 0.125 Ti 0.405 Zr 0.4703	1290	2328	5 8.1	1 2.7	2.0 0
6 5	Pb 0.80 Sr 0,20 (Mg 1/3Nb 2/3) 0.125 Ti 0.405 Zr 0.470 3	1290	5245	3 0.5	4 1.2	5.1 5
9 9	Pbo.95 Bao.05 (Mg 1/3Nb 2/3) 0.125 Ti 0.405 Zr 0.4703	1290	1215	4 9.6	2 3.2	2.1 3
2 9	Pb 0.85 Ba 0.15 (Mg 1/3 Nb 2/3) 0.125 Ti 0.405 Zr 0.4703	1290	1668	3 4.5	3 6.4	2.4 5
8 9	Pb 0.80 Ba 0.20 ( Mg 1/3 Nb 2/3 ) 0.125 Ti 0.405 Zr 0.47 O 3	1310	1723	2 0.2	8 4.2	3.1 1
6 9	Pb 0.95 Ca 0.05 (Mg 1/3 Nb 2/3) 0.125 Ti 0.405 Zr 0.4703	1310	1198	4 9.4	2 1.7	1.6 5
7 0	Pb 0.90 Ca 0.10 (Mg 1/3Nb 2/3) 0.125 Ti 0.405 Zr 0.4703	1290	1351	4 2.2	5 1.6	1.7 7
7 1	Pb 0.85 Ca 0.15 (Mg 1/3Nb 2/3) 0.125 Ti 0.405 Zr 0.4703	1290	1589	2 5.1	1 1 4.0	4.0 0
7 2	Pbo.80Gao.20 (Mg 1/3Nb 2/3) o.125 Ti o.405 Zro.4703	1290	1684	1 3.1	2 6 2.0	4.3 5
7 3	Pb (Mg 1/3Nb 2/3) 0.25 Ti 0.75 O3	1230	263	5.9	1394.0	1.60
7 4	Pb 0.95 Sr 0.05 (Mg 1/3Nb 2/3) 0.25 Ti 0.75 O3	1210	473	8.4	5 1 7.0	1.63
7 5	Pb ( Mg 1/3Nb 2/3) 0.25Ti 0.625 Zr 0.125 O3	1250	487	2 4.6	7 2.0	1.6 4
9 2	Pbo.95 Sro.05 (Mg 1/3Nb 2/3) 0.25 Tio.625 Zro.125 O3	1270	591	2 5.5	6 0.6	1.80
7 7	Pb (Mg 1/3Nb 2/3) 0.25Ti 0.50Zr 0.25O3	1300	920	2 9.0	6 6.7	1.43
7 8	Pb 0.95 Sr 0.05 (Mg 1/3Nb 2/3) 0.25 Ti 0.50 Zr 0.25 O3	1280	1186	3 7.6	2 6.3	1.10
4 9	Pb (Mg 1/3Nb 2/3) 0,25Ti 0,43Zr 0,32O3	1300	1254	3 0.3	3 3.0	1.6 7
8 0	Pb 0.95 Sr 0.05 (Mg 1/3Nb 2/3) 0.25 Ti 0.43 Zr 0.32 O3	1280	1992	3 9.6	2 0.5	1.50
8 1	Pb (Mg 1/3Nb 2/3) 0.25 Ti 0.40 Zr 0.35 O3	1,300	1274	4 6.3	2 5.5	2.0 5
8 2	Pb 0,95 Sr 0,05 (Mg 1/3Nb 2/3) 0,25 Ti 0,40 Zr 0,35 03	1280	2098	4 7.0	1 9.5	1.93

Pb (Mg L/3Nb 2/3) 0.25 Ti 0.37 Zr 0.38 O3   13 00   10 61   47.5	東坡	\$			分極2	分極24時間後	
Pb (M 8 μ/3 Nb 2μ/3) 0.25 Ti 0.37 Zr 0.38 O3         13 0 0         1 0 6 1         4 7.5           Pb 0.95 Sr 0.05 (M 8 μ/3 Nb 2μ/3) 0.25 Ti 0.31 Zr 0.38 O3         13 0 0         1 6 2 2         4 8.0           Pb (M 8 μ/3 Nb 2μ/3) 0.25 Ti 0.34 Zr 0.44 O3         1 2 8 0         1 0 4 9         3 9.9           Pb 0.95 Sr 0.05 (M 8 μ/3 Nb 2μ/3) 0.25 Ti 0.31 Zr 0.44 O3         1 2 8 0         1 4 4 7         3 5.4           Pb (M 8 μ/3 Nb 2μ/3) 0.25 Ti 0.25 Ti 0.25 Zr 0.47 O3         1 2 8 0         1 4 4 7         3 5.4           Pb (M 8 μ/3 Nb 2μ/3) 0.25 Ti 0.25 Zr 0.25 O3         1 2 8 0         1 4 4 7         3 5.4           Pb (M 8 μ/3 Nb 2μ/3) 0.25 Ti 0.25 Zr 0.25 O3         1 2 8 0         1 3 6 0         2 9.7           Pb (M 8 μ/3 Nb 2μ/3) 0.25 Ti 0.25 Zr 0.55 O3         1 2 8 0         1 3 2 0         2 9.7           Pb (M 8 μ/3 Nb 2μ/3) 0.25 Ti 0.25 Zr 0.55 O3         1 2 8 0         1 3 2 0         2 9.7           Pb (M 8 μ/3 Nb 2μ/3) 0.25 Ti 0.125 Zr 0.625 O3         1 2 8 0         1 2 2 8         2 2.1           Pb (M 8 μ/3 Nb 2μ/3) 0.25 Zr 0.75 O3         1 2 8 0         1 2 2 8         2 2.1           Pb (M 8 μ/3 Nb 2μ/3) 0.25 Zr 0.75 O3         1 2 8 0         1 2 2 8         2 2.1           Pb (M 8 μ/3 Nb 2μ/3) 0.25 Zr 0.75 O3         1 2 8 0         1 2 6 0         1 0.1           Pb (M 8 μ/	多色	<b>在</b>	F. T.	3	кр (%)	<b>8</b> (C)	tans (%)
Pb (M g μ/3 Nb χ/3) 0.25 Ti 0.37 Zr 0.38 O3         1 3 0 0         1 6 2 2         4 8.0           Pb (M g μ/3 Nb χ/3) 0.25 Ti 0.34 Zr 0.41 O3         1 3 0 0         1 0 4 9         3 9.9           Pb (M g μ/3 Nb χ/3) 0.25 Ti 0.34 Zr 0.41 O3         1 2 8 0         1 5 2 2         4 3.3           Pb (M g μ/3 Nb χ/3) 0.25 Ti 0.31 Zr 0.44 O3         1 2 8 0         1 4 4 7         3 5.4           Pb (M g μ/3 Nb χ/3) 0.25 Ti 0.28 Zr 0.47 O3         1 2 8 0         1 4 4 7         3 5.4           Pb (M g μ/3 Nb χ/3) 0.25 Ti 0.25 Zr 0.50 O3         1 2 8 0         1 3 6 0         3 4.8           Pb (M g μ/3 Nb χ/3) 0.25 Ti 0.25 Zr 0.50 O3         1 2 8 0         1 3 6 0         3 4.8           Pb (M g μ/3 Nb χ/3) 0.25 Ti 0.125 Zr 0.50 O3         1 2 8 0         1 3 2 0         3 2.7           Pb 0.95 Sr 0.05 (M g μ/3 Nb χ/3) 0.25 Ti 0.125 Zr 0.625 O3         1 2 8 0         1 2 2 8         2 2 0.7           Pb 0.95 Sr 0.05 (M g μ/3 Nb χ/3) 0.25 Ti 0.125 Zr 0.625 O3         1 2 8 0         1 2 2 8         2 2 0.7           Pb 0.95 Sr 0.05 (M g μ/3 Nb χ/3) 0.25 Zr 0.75 O3         1 2 8 0         1 2 2 8         2 2 0.7           Pb 0.95 Sr 0.05 (M g μ/3 Nb χ/3) 0.25 Zr 0.75 O3         1 2 8 0         1 6 0 6         1 0.1           Pb 0.95 Sr 0.05 (M g μ/3 Nb χ/3) 0.25 Zr 0.75 O3         1 2 8 0         1 2 8 0         1 0.1	8		1300	1061	4 7.5	2 6.2	2.4 9
Pb (M & L/3 Nb 2/3) 0.25 Ti 0.34 Zr 0.41 O3       1300       1049       39.9         Pb 0.95 Sr 0.05 (M & L/3 Nb 2/3) 0.25 Ti 0.34 Zr 0.41 O3       1280       1522       43.3         Pb (M & L/3 Nb 2/3) 0.25 Ti 0.31 Zr 0.44 O3       1280       1447       35.4         Pb (M & L/3 Nb 2/3) 0.25 Ti 0.25 Ti 0.28 Zr 0.47 O3       1280       1447       35.4         Pb (M & L/3 Nb 2/3) 0.25 Ti 0.28 Zr 0.47 O3       1280       1360       59.7         Pb (M & L/3 Nb 2/3) 0.25 Ti 0.25 Zr 0.50 O3       1280       1321       33.7         Pb (M & L/3 Nb 2/3) 0.25 Ti 0.25 Zr 0.50 O3       1280       1321       33.7         Pb (M & L/3 Nb 2/3) 0.25 Ti 0.25 Zr 0.50 O3       1280       1228       20.7         Pb (M & L/3 Nb 2/3) 0.25 Ti 0.125 Zr 0.50 O3       1280       1228       22.1         Pb (M & L/3 Nb 2/3) 0.25 Ti 0.125 Zr 0.625 O3       1280       1528       22.1         Pb (M & L/3 Nb 2/3) 0.25 Zr 0.75 O3       1280       1606       10.1	8 4		1300		4 8.0	2 3.0	2.3 9
Pb 0.95 Sr 0.05 (Mg μ/3Nb μ/3) 0.25 Ti 0.34 Zr 0.4103       1280       1522       43.3         Pb (Mg μ/3Nb μ/3) 0.25 Ti 0.31 Zr 0.4403       1280       1447       35.4         Pb (.95 Sr 0.05 (Mg μ/3Nb μ/3) 0.25 Ti 0.25 Zr 0.4703       1280       1447       35.4         Pb (.95 Sr 0.05 (Mg μ/3Nb μ/3) 0.25 Ti 0.25 Zr 0.4703       1280       1360       59.7         Pb (.95 Sr 0.05 (Mg μ/3Nb μ/3) 0.25 Ti 0.25 Zr 0.5003       1280       1360       34.8         Pb (.95 Sr 0.05 (Mg μ/3Nb μ/3) 0.25 Ti 0.25 Zr 0.5003       1280       1321       33.7         Pb (.95 Sr 0.05 (Mg μ/3Nb μ/3) 0.25 Ti 0.125 Zr 0.625 O3       1280       1922 8 (.221         Pb (.95 Sr 0.05 (Mg μ/3Nb μ/3) 0.25 Tr 0.125 Zr 0.625 O3       1300       533       7.3         Pb (.95 Sr 0.05 (Mg μ/3Nb μ/3) 0.25 Zr 0.75 O3       1280       1606       10.1	8		1300	1049	3 9.9	36.0	2.2 6
Pb (Mg μ3Nb 2μ3 ) θ, 25 Ti θ, 31 Zr θ, 44 θ 3       13 0 0       67 5       3 0.1         Pb 0, 95 Sr θ, 05 (Mg μ3Nb 2μ3 ) θ, 25 Ti θ, 21 Zr θ, 44 θ 3       12 8 0       14 4 7       3 5.4         Pb (Mg μ3Nb 2μ3 ) θ, 25 Ti θ, 28 Zr θ, 47 θ 3       13 0 0       63 0       2 9.7         Pb (Mg μ3 Nb 2μ3 ) θ, 25 Ti θ, 25 Zr θ, 50 θ 3       12 8 0       13 6 0       3 4.8         Pb (Mg μ3 Nb 2μ3 ) θ, 25 Ti θ, 25 Zr θ, 50 θ 3       12 8 0       13 2 1       3 3.7         Pb (Mg μ3 Nb 2μ3 ) θ, 25 Ti θ, 125 Zr θ, 625 θ 3       12 8 0       13 2 1       3 3.7         Pb (Mg μ3 Nb 2μ3 ) θ, 25 Ti θ, 125 Zr θ, 625 θ 3       12 8 0       12 2 8       2 2.7         Pb (Mg μ3 Nb 2μ3 ) θ, 25 Zr θ, 625 θ 3       12 8 0       12 2 8       2 2.2         Pb (Mg μ3 Nb 2μ3 ) θ, 25 Zr θ, 75 θ 3       12 8 0       15 2 8       7.3         Pb φ, 95 Sr θ, 05 (Mg μ3 Nb 2μ3 ) θ, 25 Zr θ, 75 θ 3       12 8 0       16 0 6 1 0.1	8 6		1280	1522	4 3.3	2 2.5	2.8 3
Pb 0.95 Sr 0.05 (Mg μ/3Nb 2/3) 0.25 Ti 0.31 Zr 0.44 03       1280       1447       35.4         Pb (Mg μ/3Nb 2/3) 0.25 Ti 0.26 Zr 0.47 03       1300       630       29.7         Pb 0.95 Sr 0.05 (Mg μ/3Nb 2/3) 0.25 Ti 0.26 Zr 0.26 Zr 0.47 03       1280       1360       34.8         Pb (Mg μ/3Nb 2/3) 0.25 Ti 0.25 Zr 0.50 03       1280       1321       33.7         Pb (Mg μ/3Nb 2/3) 0.25 Ti 0.125 Zr 0.625 03       1280       493       20.7         Pb (Mg μ/3Nb 2/3) 0.25 Tr 0.125 Zr 0.625 03       1280       1228       22.1         Pb (Mg μ/3Nb 2/3) 0.25 Zr 0.75 03       1280       1528       22.1         Pb (ω 95 Sr 0.05 (Mg μ/3Nb 2/3) 0.25 Zr 0.75 03       1280       1606       10.1	8 7		1300		3 0.1	7 0.2	3.19
Pb (Mg μ/3 Nb μ/3) 0.25 Ti 0.28 Zr 0.47 O3       1300       630       29.7         Pb 0.95 Sr 0.05 (Mg μ/3 Nb μ/3) 0.25 Ti 0.28 Zr 0.47 O3       1280       1360       34.8         Pb (Mg μ/3 Nb μ/3) 0.25 Ti 0.25 Zr 0.50 O3       1280       1321       33.7         Pb (Mg μ/3 Nb μ/3) 0.25 Ti 0.125 Zr 0.625 O3       1280       493       20.7         Pb (Mg μ/3 Nb μ/3) 0.25 Ti 0.125 Zr 0.625 O3       1280       1228       22.1         Pb (Mg μ/3 Nb μ/3) 0.25 Zr 0.75 O3       1280       1228       22.1         Pb (Mg μ/3 Nb μ/3) 0.25 Zr 0.75 O3       1280       1606       10.1	& &		1280	1447	3 5.4	2 6.1	2.9 1
Pb 0.95 Sr 0.05 (M g 1/3 Nb 2/3) 0.25 Ti 0.28 Zr 0.47 O3       1280       1360       34.8         Pb (M g 1/3 Nb 2/3) 0.25 Ti 0.25 Zr 0.50 O3       1300       566       29.5         Pb 0.95 Sr 0.05 (M g 1/3 Nb 2/3) 0.25 Ti 0.25 Zr 0.55 O3       1280       1321       33.7         Pb (M g 1/3 Nb 2/3) 0.25 Ti 0.125 Zr 0.625 O3       1300       493       20.7         Pb (M g 1/3 Nb 2/3) 0.25 Zr 0.75 O3       1280       1228       22.1         Pb (M g 1/3 Nb 2/3) 0.25 Zr 0.75 O3       1300       533       7.3         Pb 0.95 Sr 0.05 (M g 1/3 Nb 2/3) 0.25 Zr 0.75 O3       1280       1606       10.1	8		1300	630		6 2.8	3.5 5
Pb(Mgy3Nb2y3) 0.25Ti 0.25 Zr 0.5003       1300       566       29.5         Pb 0.95 Sr 0.05 (Mgy3Nb2y3) 0.25Ti 0.25 Zr 0.5003       1280       1321       33.7         Pb (Mgy3Nb2y3) 0.25Ti 0.125 Zr 0.625 O3       1300       493       20.7         Pb 0.95 Sr 0.05 (Mgy3Nb2y3) 0.25 Tr 0.125 Zr 0.625 O3       1280       1228       22.1         Pb (Mgy3Nb2y3) 0.25 Zr 0.75 O3       1300       533       7.3         Pb 0.95 Sr 0.05 (Mgy3Nb2y3) 0.25 Zr 0.75 O3       1280       1606       10.1	0 6		1280	1360	3 4.8	3 0.7	3.0 2
Pb 0.95 Sr 0.05 (M g μ/3Nb 2/3) 0.25 Ti 0.25 Zr 0.50 O3       1280       1321       33.7         Pb (M g μ/3Nb 2/3) 0.25 Ti 0.125 Zr 0.625 O3       1300       493       20.7         Pb 0.95 Sr 0.05 (M g μ/3Nb 2/3) 0.25 Ti 0.125 Zr 0.625 O3       1280       1228       22.1         Pb (M g μ/3Nb 2/3) 0.25 Zr 0.75 O3       1300       533       7.3         Pb 0.95 Sr 0.05 (M g μ/3Nb 2/3) 0.25 Zr 0.75 O3       1280       1606       10.1	9 1		1300		2 9.5	6 4.1	3.3 2
Pb(Mgy3Nb2y3) 0.25Ti 0.125 Zr 0.625 O3       1300       493       20.7         Pb0.98 Sr 0.05 (Mgy3Nb2y3) 0.25 Ti 0.125 Zr 0.625 O3       1280       1228       ,22.1         Pb(Mgy3Nb2y3) 0.25 Zr 0.75 O3       1300       533       7.3         Pb0,95 Sr 0.05 (Mgy3Nb2y3) 0.25 Zr 0.75 O3       1280       1606       10.1	9 2		1280	2	3 3.7	4 2.9	3.2 9
Pbo.98 Sr o. 05 (Mg 1/3Nb 2/3) 0.25 Ti o.125 Zr o.625 O3       1 2 8 0       1 2 2 8       , 2 2.1         Pb (Mg 1/3Nb 2/3) 0.25 Zr o.75 O3       1 3 0 0       5 3 3       7.3         Pb 0,95 Sr o.05 (Mg 1/3Nb 2/3) 0.25 Zr o.75 O3       1 2 8 0       1 6 0 6       1 0.1	6			493	2 0.7	8 0.0	2.9 7
1300     533     7.3       1280     1606     10.1	<b>7</b> 6	Pbo. 95 Sr o. 05 (Mg 1/3Nb 2/3) 0.25 Ti o. 125 Zr o. 625 O3	1280	1 2 2 8	, 2 2.1	7 1.6	3.6 4
1280 1606 10.1	9 2		1300	5 3 3	7.3	3 8 4.0	3.2 7
	9 6	Pbo,95Sro.05 (M81/5Nb2/3) 0.25Zro,7503	1280	1606	1 0.1	3 1 8.0	4.2 0

第4~第6図は他の代表的組成物について本発 明の主たる改良点であるアルカリ土類金属の置換 量による誘電率 E と共振抵抗R ならびにとれに付 随した径方向結合係数kp の変化を示したもので ある。とれらの図と表中の其他の例から Pb(Mg<sub>1/3</sub>Nb<sub>2/3</sub>)<sub>x</sub>Ti<sub>y</sub>Zr<sub>z</sub>O<sub>3</sub> 基本組成 のPb側をSr,Ba,Caのアルカリ土類金属 の内から少なくとも1つ以上で置換することによ つて、共振抵抗を低下させると共に誘電率を著し つては置換量 3~10 モル%以内で径方向結合係 数の改善も行えりる。特に共振抵抗はいずれの場 合も置換量 5~1 0原子%で最も小さい値を示す ことがわかつた。

しかしアルカリ土類元素の置換量は20モル% 15 特 以上では共振抵抗が再び大きな値となると共に径 方向結合係数が非常に小さくなり圧電性磁器材料 として使用するのには不適当となるため本発明範

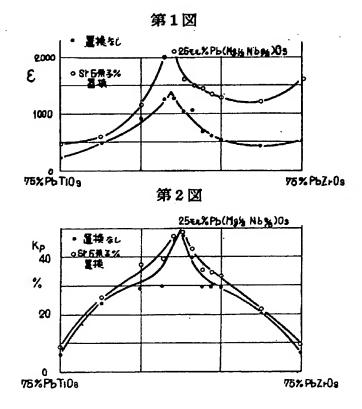
囲から除かれる。

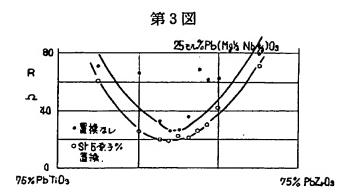
#### 特許請求の範囲

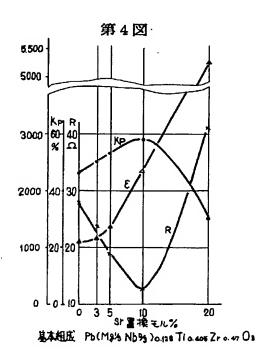
 $xPb (Mg_{1/3}Nb_{2/3})O_3 - yPbTiO_3$ zPbZrO3 系磁器組成物のうち、Pb原子の一 5 部をSr.Ba, Ca群から選ばれた少なくとも 1つの原子で20原子%まで置換されたことを特 敬とする強誘電性磁器組成物。ただしx,y,z の値はそれぞれ $x = 87.5 \sim 1$   $y = 81.3 \sim 0$ (0を含まない)、z-95.0~0(0を含まな く増加させることが可能であり、さらに組成によ10 い)x+y+z=100(いずれもモル%)とす

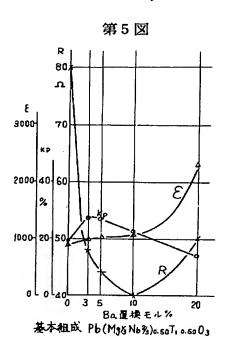
#### 引用文献

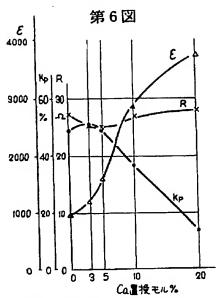
公昭38-10076 ソピエットフイジックスーテクニカルフィジック ス3〔7〕 第1380-82頁 1958年米ニューヨーク











基本組成 Pb(Mg/s Nb95) a 25 Ti a 275 Zr a 1975 Os

